

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 03-250583

(43)Date of publication of application : 08.11.1991

(51)Int.Cl.

H05B 33/22

(21)Application number : 02-045717

(71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22)Date of filing : 28.02.1990

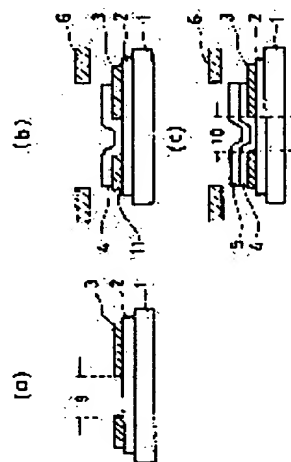
(72)Inventor : HOSOKAWA CHISHIO  
KUSUMOTO TADASHI

## (54) ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT AND ITS MANUFACTURE

## (57)Abstract:

PURPOSE: To offer an EL element having uniform light emitting surface and excellent pattern accuracy by providing a non-light emission element part equipped with an inter-layer insulating film formed through pattern processing between a lower electrode and its mating electrode.

CONSTITUTION: A lower electrode 2 is formed on a base board 1 by means of evaporation process, and thereover an inter-layer insulating film 3 is formed which has undergone patterning so that the EL element formation part becomes an opening 9. To secure a lower electrode takeout position 11, an evaporation mask 6 is put on the lower electrode except the opening and its surrounding, and an organic multi-layer part 4 incl. a light emission layer is formed by means of evaporation. While the evaporation mask 6 is left in place, a mating electrode 5 is evaporated fast on this organic multi-layer part 4 incl. light emission layer. Thereby an EL element is accomplished, which is equipped with a light emission element part 10 having good pattern accuracy.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's]

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

## ⑫ 公開特許公報(A) 平3-250583

⑬ Int. Cl.<sup>9</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 平成3年(1991)11月8日

H 05 B 33/22

8815-3K

審査請求 未請求 請求項の数 5 (全10頁)

⑮ 発明の名称 エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法

⑯ 特 願 平2-45717

⑰ 出 願 平2(1990)2月28日

⑱ 発 明 者 細 川 地 潮 千葉県君津郡袖ヶ浦町上泉1280番地 出光興産株式会社内  
 ⑲ 発 明 者 楠 本 正 千葉県君津郡袖ヶ浦町上泉1280番地 出光興産株式会社内  
 ⑳ 出 願 人 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号  
 ㉑ 代 理 人 弁理士 大 谷 保

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法

## 2. 特許請求の範囲

(1) 基板に設けられた下部電極、発光層を含む有機多層部及び対向電極からなる素子を発光素子部分として含むエレクトロルミネッセンス素子において、下部電極と対向電極との間に、パターン加工された層間絶縁膜を存在させた非発光素子部分を保有することを特徴とするエレクトロルミネッセンス素子。

(2) 基板に設けられた下部電極上に層間絶縁膜をパターン加工にて膜付けした後、形成された層間絶縁膜の開口部に発光層を含む有機多層部および対向電極を形成する工程を行うことを特徴とするエレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

(3) 発光層を含む有機多層部を、蒸着法により形成する請求項2の製造方法。

(4) 対向電極を、蒸着法あるいはスパッタリン

グ法により形成する請求項2の製造方法。

(5) 層間絶縁膜としてSiO<sub>2</sub>層のエッチング加工によるパターン加工の際、反応性イオンエッチング方法を用いることを特徴とする請求項2の製造方法。

## 3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明はエレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法に関し、詳しくは層間に絶縁膜を存在させてなるパターン精度が良好で発光面の均一性が高いエレクトロルミネッセンス素子、及びそれを簡易な工程で効率良く製造する方法に関する。

(従来の技術及び発明が解決しようとする課題)

エレクトロルミネッセンス素子(以下EL素子という)は、自己発光のため視認性が高く、また完全固体素子であるため耐衝撃性に優れるという特徴を有しており、各種の表示装置における発光素子等の利用が試みられている。特に有機EL素子は陰極/発光層/正孔注入層/陽極、陰極/電子注入層/発光層/陽極、陰極/電子注入層/発

光層／正孔注入層／陽極、陽極／発光層／電子注入層／陰極／等の構成のものが開発されている。これらは、(1)低電圧を印加するだけで発光する、(2)高輝度高効率の発光が得られる、(3)多色表示が可能であるなどの優れた特性を有しており、発光材料、電荷注入層、電極材料等の研究が盛んに行われている（「アブライド・フィジクス・レターズ」第51巻、913頁（1987年）；「アブライド・フィジクス・レターズ」第55巻、1489頁（1989年）；「ジャーナル・オブ・アブライド・フィジクス」第65巻、3610頁（1989年））。

従来、有機EL素子を作製するにあたっては、素子の対向電極はマスクを基板上にかけ発光素子形成部分に電極を蒸着する方法により製造されているが、蒸着の廻り込みにより対向電極のパターン精度が悪くなるという問題があった。また、有機層を形成する際のマスクと、対向電極を形成する際のマスクが異なるため、マスク交換機構を持たない通常の蒸着装置においては、対向電極形成

前に一度真空を破り、真空槽を開けマスク交換を行ったり、マスクを設置する必要があり、工程が複雑である。この場合、有機層と対向電極の界面が汚染され、均一性等の良好なEL素子を得ることが困難であった。

さらに、有機EL素子において、陰極にマグネシウムと第二金属系の合金または混合物の電極を二元蒸着法により形成し使用することが多いが、これらを対向電極に使用した場合電極を蒸着させる際、廻り込みによるグレ部分を生じる。そのため、マグネシウムと第二金属系の廻り込みの程度が異なることから、この部分の組成が対向電極面内とずれるため、発光の均一性が損なわれるという問題があった。

（課題を解決するための手段）

そこで、本発明者らは、上記の従来の技術の問題点を解決し、パターン精度の優れた発光面の均一なEL素子を、マスク交換等の操作を最小限度でしか必要としない工程で製造する方法を開発すべく鋭意研究を重ねた。その結果、層間絶縁膜を

設けたEL素子が、上記目的が達成できることを見出した。本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち本発明は、基板に設けられた下部電極、発光層を含む有機多層部及び対向電極からなる発光素子部分を含むEL素子において、下部電極と対向電極との間に、パターン加工された層間絶縁膜を存在させた非発光素子部分を保有することを特徴とするEL素子を提供するものである。また本発明は、基板に設けられた下部電極上に層間絶縁膜をパターン加工にて膜付けした後、形成された層間絶縁膜の開口部に発光層を含む有機多層部および対向電極を形成する工程を行うことを特徴とするEL素子の製造方法をも提供するものである。

本発明のEL素子は、素子の基板上に形成される下部電極（陽極あるいは陰極）、発光層を含む有機多層部及びその上に形成される対向電極（下部電極が陽極である場合は陰極であり、陰極である場合は陽極である。）からなる構成を発光素子

部分に持ち、非発光素子部分には、下部電極と対向電極の間にパターン加工された層間絶縁膜を設けたことが特徴である。ここで、パターン加工された層間絶縁膜とは、発光素子を形成する部分（発光素子部分）を開口部として発光素子を形成しない部分（非発光素子部分）に施される下部電極と対向電極の間にある絶縁膜である。この膜の上にさらに発光材料層及び対向電極を形成すると、パターン加工された開口部のみに通電可能となり、その部分にのみパターン精度の良い発光が得られる。尚、層間絶縁膜は下部電極と対向電極の間に発光層を含む有機多層部が存在しない場合にも、これら下部電極と対向電極の短絡を防ぎ電氣的に絶縁を防ぐ層である場合もある。

この層間絶縁膜としては、絶縁体である材料からなる膜であれば、特に制限はなく種々のものが使用できる。具体的には無機物としては、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 等の酸化物、窒化物などが挙げられ、有機物としてはポリイミド等の高分子が挙げられる。これらの材料を用いて製膜するには、

通常無機物の場合、蒸着法、スパッタリング法、プラズマ CVD 法などの方法で行われ、また有機物の場合、スピンコート法、キャスト法、LB 法などの方法で行われる。

さらに本発明において、この層間絶縁膜は開口部すなわち発光素子形成部分を設けるパターン加工を施されたものである。ここで、パターン加工は種々の方法で行うことができ、特に制限はないが、フォトリソストを用いたエッチング法（ウェットエッチングまたはドライエッチング）が好適である。エッチングにあたっては、膜の材料、厚さ、工程等より適宜ウェットエッチング剤あるいはドライエッチングガス（例えば  $\text{SiO}_2$  のエッチングのときには  $\text{CHF}_3$ ）を選択すればよい。このエッチングにおいて、感光性ポリイミドコーティング剤を用いるとフォトリソスト剤を使用する必要がなく工程が簡便で好ましい。

また、本発明において層間絶縁膜は、少なくとも  $1 \text{ MV}/\text{cm}$  の電界強度に耐えうるものであることが好ましい。 $1 \text{ MV}/\text{cm}$  より耐圧の低い材料を

用いた場合、リーク電流により素子の配線が破断するなどの問題を生じることがある。通常、スパッタリング法又は CVD 法により形成される  $\text{SiO}_2$  層、 $\text{Y}_2\text{O}_3$  層、スピンコート法で形成されたポリイミド層などは充分な電界強度を有しており、好適に利用できる。

また、膜の厚さは特に制限はないが、通常は  $1000 \text{ \AA} \sim 5 \mu\text{m}$  である。 $1000 \text{ \AA}$  未満であると、通常有機 EL 素子に使用される駆動電圧  $3 \sim 20 \text{ V}$  で下部電極と対向電極間の絶縁破壊、リーク電流等の好ましくない事態が生じる。膜の厚さが  $5 \mu\text{m}$  を越えると絶縁膜開口部端の断差部分で対向電極の断線が生じ好ましくない。膜厚を厚くする場合、断線を防ぐためには、断差部分を斜めにする、いわゆるテーパ加工を行うと良い。

本発明の EL 素子において、層間絶縁膜として黒色のものまたは濃色のものを使用すると、より発光素子のコントラストが上昇して好ましい。このような例には黒色色素（カーボンブラック等）を混入したポリイミド等がある。

ちなみに、この層間絶縁膜は、従来から、対向電極上に素子を封止するために形成される封止膜とは、根本的に機能の異なるものであるとを付言しておく。

本発明の EL 素子の構成は、また、 $\text{ZnS}:\text{Mn}$  などの無機蛍光材を発光層として用いた電極／絶縁膜／発光層／絶縁膜／電極等の無機 EL 素子に用いられる絶縁膜とも異なるものである。つまり本発明の層間絶縁膜は、非発光素子部分を形成するためのものであるからである。発光素子部分においては、下部電極／発光層を含む有機多層部／対向電極の構成であり、非発光素子部分においては、下部電極／層間絶縁膜／発光層を含む有機多層部／対向電極、または下部電極／層間絶縁膜／対向電極、または下部電極／層間絶縁膜の構成になっている。

本発明において EL 素子の基板としては、透明性を有するものが好ましく、一般にガラス、透明プラスチック、石英等が充当される。厚さについては素子の使用目的などにより適宜選定される。

また、電極（陽極、陰極）としては、金、アルミニウム、インジウム、マグネシウム、銅、銀などの金属、これらの合金、混合物、特開昭 63-295695 号公報に開示されている合金または混合物電極、インジウムチンオキサイド（酸化インジウムと酸化錫の混合酸化物；ITO）、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{ZnO}$  等の透明電極等が挙げられる。これらの中で素子の駆動電圧を低くできるため、特開昭 63-295695 号公報に開示されている合金または混合物電極、ITO、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{ZnO}$  等の透明電極が好ましい。なお陽極には、仕事関数の大きい金属または電気伝導性化合物が好適であり、また陰極には、仕事関数の小さい金属または電気伝導性化合物が好適である。これらの電極は、少なくとも一方が透明あるいは半透明であると、発光を透過し取り出す効率が良いため好ましい。電極の厚さは通常、EL 素子において行われる範囲で適宜決定されるが、一般に  $10 \text{ nm} \sim 1 \mu\text{m}$ 、特に  $200 \text{ nm}$  以下が発光の透過率を高める場合は好ましい。

なお、下部電極及び対向電極はいずれが陽極であっても陰極であってもよい。また、下部電極は通常スパッタリング法、蒸着法、スクリーン印刷法などにより、対向電極はスパッタリング法、蒸着法等により形成される。また、下部電極がパターンニングされたものであってもよい。

さらに発光層を含む有機多層部とは、E1素子の発光に必要な有機層であって、具体的には発光層、発光層/正孔注入層、電子注入層/発光層、電子注入層/発光層/正孔注入層等の構成のものが挙げられる。ここで発光層は、以下の三つの機能を併せ持つものである。即ち、

#### ①注入機能

電界印加時に、陽極又は正孔注入輸送層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入輸送層より電子を注入することができる機能

#### ②輸送機能

注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能

ピレン、骨格を含む縮合環発光材料、特開昭59-194393号公報に記載のオキサジアゾール、オキサチアゾール系蛍光増白剤、特開昭63-295695号公報記載の金属キレート化オキサノイド化合物、特願平1-009995号明細書にあるクマリン系化合物等の蛍光材料、特願昭63-313932号明細書、特開平1-029681号明細書、同1-054957号明細書、同1-068387号明細書、同1-068388号明細書、同1-067448号明細書、同1-075035号明細書にあるスチルベン系発光材料、アブライド フィジクス レターズ第55巻1487頁(1989年)等に記載のあるスチリルアミン系化合物、テトラフェニルブタジエン、テトラフェニルシクロペンタジエン、テトラフェニルエチレン及びボルフィリン等々である。

また、本発明のE1素子では、発光層を含む有機多層に正孔注入層や電子注入層は必ずしも必要ではないが、これらの層があると、発光性能が一

#### ③発光機能

電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能

但し、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また正孔と電子の移動度で表わされる輸送能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

このような条件を満たす材料であって、所望の発光が得られるものを適宜使用することができる。その膜厚は、特に制限はなく適宜状況に応じて選定すればよいが、通常は5nm~5μm程度とすればよい。また、各種のフィルター層を素子発光面に面して設けることもできる。

また、多色のE1素子の場合には発光層の発光材料は一種類には限定されず、発光素子形成部分に各々異なる所望の発光色を発光する発光材料を使用することができる。ここで、発光材料としては公知の様々なものを充当できるが、例えばベリレン、アントラセン、ナフタレン、フェナンスレン、

段と向上する。ここで、正孔注入層は、正孔伝達化合物(正孔注入材料)よりなり、陽極より注入された正孔を、発光層に伝達する機能を持つ。この層をE1素子の陽極と発光層間に挟むことにより低電圧でより多くの正孔が発光層に注入され、素子の輝度は向上する。

ここで用いられる正孔注入層の正孔伝達化合物は、電場を与えられた二個の電極間に配置されて陽極から正孔が注入された場合、正孔を適切に発光層へ伝達することができる化合物である。正孔注入輸送層を陽極と発光層との間に挟むことにより、より低い電界で多くの正孔が発光層に注入される。さらに、陰極や電子注入層から発光層に注入された電子は、発光層と正孔層の界面に存在する電子の障壁により、この発光層内の界面付近に蓄積され発光効率が向上する。ここで好ましい正孔伝達化合物は、 $10^4 \sim 10^6$ ボルト/cmの電場を与えられた電極間に層が配置された場合、少なくとも $10^{-4}$ cd/ボルト・秒の正孔移動度をもつ。従って好ましい例としては、光導電材料において

正孔の電荷輸送材として用いられている各種化合物があげられる。

このような電荷輸送材として以下のような例があげられる。

①米国特許第3112197号明細書等に記載されているトリアゾール誘導体、

②米国特許第3189447号明細書等に記載されているオキサジアゾール誘導体、

③特公昭37-16096号公報等に記載されているイミダゾール誘導体、

④米国特許第3615402号、同3820989号、同3542544号明細書や特公昭45-555号、同51-10983号公報さらには特開昭51-93224号、同55-17105号、同56-4148号、同55-108667号、同55-156953号、同56-36656号公報等に記載されているポリアリールアルカン誘導体、

⑤米国特許第3180729号、同4278746号明細書や特開昭55-88064号、同55-

体、

⑥米国特許第3526501号明細書等に記載されているアミノ置換カルコン誘導体、

⑦米国特許第3257203号明細書等に記載されているオキサゾール誘導体、

⑧特開昭56-46234号公報等に記載されているスチリルアントラセン誘導体、

⑨特開昭54-110837号公報等に記載されている

⑩特開昭54-110837号公報等に記載されているフルオレノン誘導体、

⑪米国特許第3717462号明細書や特開昭54-59143号、同55-52063号、同55-52064号、同55-46760号、同55-85495号、同57-11350号、同57-148749号公報等に記載されているヒドラゾン誘導体、

⑫特開昭61-210363号、同61-228451号、同61-14642号、同61-72255号、同62-47646号、同62-

88065号、同49-105537号、同55-51086号、同56-80051号、同56-88141号、同57-45545号、同54-112637号、同55-74546号公報等に記載されているピラゾリン誘導体およびピラズロン誘導体、

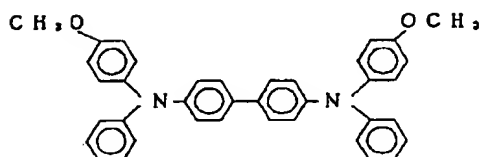
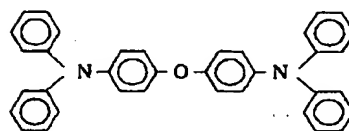
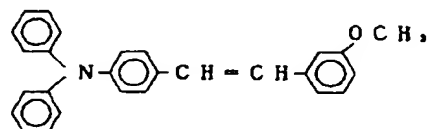
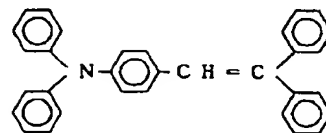
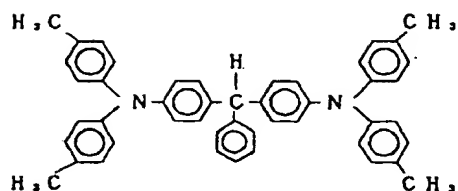
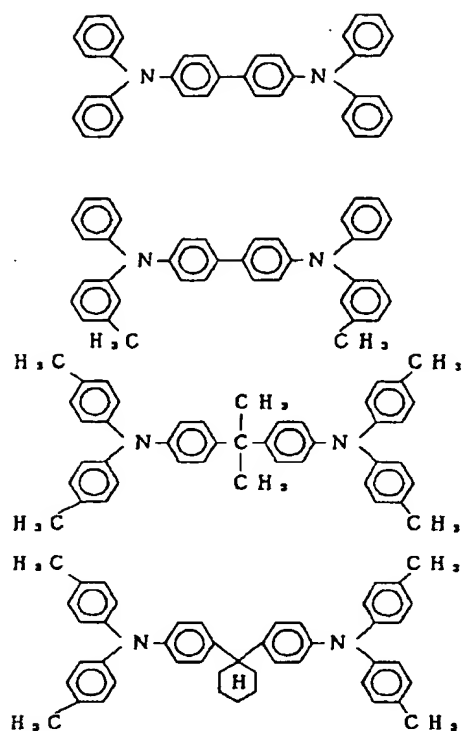
⑬米国特許第3615404号明細書や特公昭51-10105号、同46-3712号、同47-25336号公報さらには特開昭54-53435号、同54-110536号、同54-119925号公報等に記載されているフェニレンジアミン誘導体、

⑭米国特許第3567450号、同3180703号、同3240597号、同3658520号、同4232103号、同4175961号、同4012376号明細書や特公昭49-35702号、同39-27577号公報さらには特開昭55-144250号、同56-119132号、同56-22437号公報、西独特許第1110518号明細書等に記載されているアリールアミン誘導

-36674号、同62-10652号、同62-30255号、同60-93445号、同60-94462号、同60-174749号、同60-175052号公報等に記載されているスチルベン誘導体などを列挙することができる。

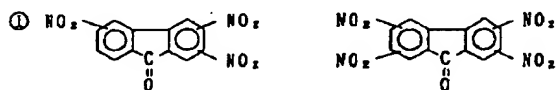
さらに特に好ましい例としては、特開昭63-295695号公報に開示されているホール輸送層としての化合物(芳香族三級アミン)や正孔注入層としての化合物(ポルフィリン化合物)をあげることができる。

さらに特に正孔伝達化合物として好ましい例は、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報及び米国特許第4127412号明細書等に開示されているものがある。それらの例を示せば次の如くである。



これらの正孔伝達化合物から正孔注入層を形成するが、この正孔注入層は一層からなってもよく、あるいは上記一層と別種の化合物を用いた正孔注入層を積層してもよい。

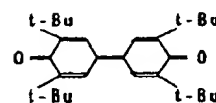
一方、電子注入層は電子を伝達する化合物よりなる。電子注入層を形成する電子伝達化合物(電子注入材料)の好ましい例としては、



などのニトロ置換フルオレノン誘導体、

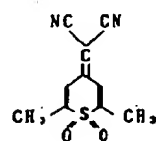
②特開昭57-149259号、同58-55450号、同63-104061号公報等に記載されているアントラキノジメタン誘導体、

③Polymer Preprints, Japan Vol. 37, No 3 (1988), p.681等に記載されている



などのジフェニルキノン誘導体、

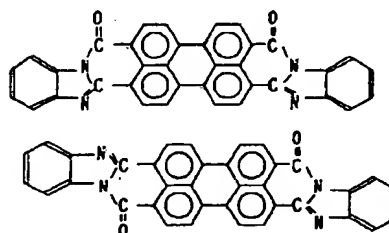
④



などのチオピランジオ

キシド誘導体、

⑤J. J. Appl. Phys., 27, L 269(1988)等に記載されている





⑤特開昭60-69657号, 同61-

143764号, 同61-148159号公報等に記載されているフレオレニリデンメタン誘導体、

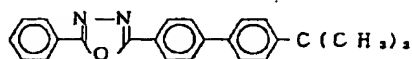
⑦特開昭61-225151号, 同61-

233750号公報等に記載されているアントラキノジメタン誘導体及びアントロン誘導体、

⑧アブライド フィジックスレータズ第55巻

1489頁(1989年)で開示されている

一般式



で表わされる化合物及び類似のオキサジアゾール誘導体などをあげることができる。

本発明のE1素子の発光層を含む有機多層部は上述の如き層からなるものであり、その機能から正孔注入層は陽極と発光層の間に、電子注入層は陰極と発光層の間に設けるものである。

以上の構成よりなる本発明のE1素子は直流を加える場合、陽極を+、陰極を-の極性として、電圧3~40Vを印加すれば絶縁膜が形成されていない部分のみが精度良く発光する。逆の極性で

ものにさらに発光層を含む有機多層部を形成する。ここで発光層を含む有機多層部は、蒸着法により通常形成されるが、下部電極の取り出し位置を確保するため蒸着マスクなどのマスクを用い、下部電極上にかけて蒸着を行う。したがって、上記開口部の上に有機多層部が形成される。有機多層部中に正孔注入層、電子注入層を形成する場合、下部電極が陽極の場合には正孔注入層/発光層、正孔注入層/発光層/電子注入層の構成とし、下部電極が陰極の場合には電子注入層/発光層、電子注入層/発光層/正孔注入層の構成とすべきである。なお、蒸着にあたっての条件は、使用する発光層の有機化合物の種類、膜厚等により異なるが、一般にボート加熱温度50~400℃、真空度 $10^{-3} \sim 10^{-5}$  Pa、蒸着速度0.01~50 nm/秒、基板温度-50~300℃、膜厚5 nmないし5  $\mu$ mの範囲で適宜選択することが好ましい。

次いで、本発明においてこの発光層を含む有機多層部を形成した上に対向電極を形成し、E1素子が得られる。通常対向電極の形成は蒸着法で行

電圧を印加しても電流は流れず発光しない。また、交流や任意のパルス電圧を印加することもでき、この場合陽極に+、陰極に-のバイアスの状態のときのみ発光する。

本発明におけるE1素子は、次の如き方法にて効率良く製造される。

まず、基板上に下部電極を通常行われている方法により形成し、その上に上記の如き層間絶縁膜を形成する。下部電極はスパッタリング法、蒸着法、スクリーン印刷法などで行われ、また、下部電極をパターンニングしておいてもよい。絶縁膜形成はその材料等により種々の方法を選択できるが、蒸着法、スパッタリング法、スピンコート法などが挙げられる。この場合、膜形成時に発光素子を形成する部分すなわち開口部を有するパターンの膜を形成してもよいが、膜形成後にエッチングなどの方法により開口部を形成する方法がパターン精度が向上し好ましい。

次いで、本発明の方法では、上記の如き下部電極上にパターン加工をした層間絶縁膜を形成した

われ、発光層を含む有機多層部を形成した際の真空度で、また同様の蒸着マスクを使用して行うことができる。従来法においては、発光材料層の形成に使用される蒸着マスクと対向電極の形成に使用される蒸着マスクは異なるため、この工程でマスクの交換が必要で作成面の汚染が問題であったが、本発明の方法ではこのような問題がなく、良質の素子を製造することができる。

次に、本発明のE1素子の製造方法を第1図に従って説明する。第1図(a)は基板1の上に下部電極2を蒸着により形成し、さらにその上に発光素子形成部分が開口部9となるようパターンニングした層間絶縁膜3を形成したものの断面図である。このように形成されたものに、下部電極取り出し位置(第1図(b)の11)を確保するため、蒸着マスク6を開口部分及びその周辺を除いた下部電極上にかけて、発光層を含む有機多層部4を蒸着により形成する。このとき第1図ではマスク6と絶縁膜3が離れているが、これは理解を助けるための便宜的なものであり、実際には密着させる方が

より好ましい。得られたものの断面図を第1図(b)に示す。続いて、同一の蒸着マスク6を設置したまま発光層を含む有機多層部4の上に対向電極5を蒸着することにより、本発明のEL素子が製造される。このEL素子の断面図を第1図(c)に示す。本発明のEL素子は、第1図(a)における開口部9に、第1図(c)における発光素子部分10がパターン精度が良く形成される。

なお、多色EL素子を製造する場合は、層間絶縁膜において形成される各開口部に、所望する発光色を発光可能な材料を使用した発光層を各々形成すればよい。具体的には、第2図に従って説明する。まず、基板1の上に下部電極2を蒸着により形成する。ここで、多色EL素子形成のため下部電極2は電気的に独立して形成する。この上に発光素子形成部を開口部としたパターンニングした層間絶縁膜3を、蒸着により開口部9a及び開口部9bを形成する。このようにして形成されたものの断面図を第2図(a)に示す。次いで、蒸着マスク7を開口部9a及びその周辺を除いた部分に

かけて発光層を含む有機多層部4を蒸着にて形成し、さらに続いて対向電極5を蒸着にて形成する。このようにして形成されたものの断面図を第2図(b)に示す。さらに、蒸着マスク8を開口部9bを除いた部分にかけて発光層を含む有機多層部4と異なる発光材料を用いた発光層を含む有機多層部4'を蒸着にて形成し、さらに続いて対向電極5'を蒸着にて形成する。このようにして形成されたものの断面図を第2図(c)に示す。このようにして得られたEL素子は開口部9a及び開口部9bに各々異なる発光材料を使用した発光層が形成されているため、異なる発光色を発光できる素子となる。なお、同様の方法でさらに三色以上の発光色の発光が得られるEL素子を製造することができる。

このような方法により前述の如き高性能のEL素子が製造できる。但しこの場合、マスク交換が必要であるがマスクの枚数は従来方法よりも少なくすることができる。

#### 〔実施例〕

次に本発明を実施例よりさらに詳しく説明する。  
実施例1

##### (1) 層間絶縁膜の形成

75mm×25mm×1mmのガラス基板上にITOを蒸着法にて1000Åの厚さで製膜したものを下部電極を有する基板とした(HOYA製)。この下部電極上に感光性ポリイミドコーティング剤(TORAY社製、UR3140)をスピンコートにて、スピナー回転数4000rpmで30秒間かけて塗布した。次いで、オープンにて80℃、60分間の乾燥(ブリーク)を行い、発光パターンのフォトリソマスクを通して超高圧水銀灯(10mW/cm<sup>2</sup>)にて8秒間、フォトリソマスクとブリークしたポリイミドコーティング面を密着させてコンタクト露光を行った。この後現像液(TORAY社製、DV-140)に35~40秒間浸け、さらにイソプロパノール液に浸けてから15秒間超音波処理を行った。露光された部分のポリイミドコーティング剤は基板よりとれて、層間絶

縁膜であるポリイミドのパターンニングが得られた。

続いて、窒素ガス雰囲気下のオープン中で180℃にて30分、さらに300℃にて30分キュアして、ガラス基板/ITO/層間絶縁膜を形成した。層間絶縁膜の膜厚を触針膜厚計にて測定したところ、1.2μmであった。

##### (2) 有機EL素子の製造

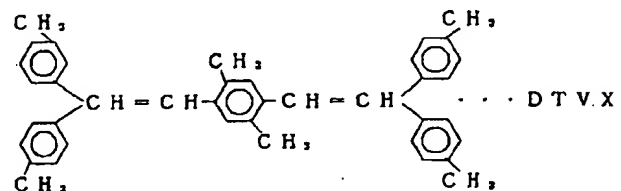
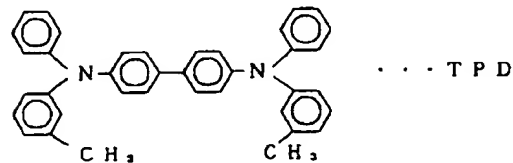
上記(1)で得られたガラス基板/ITO/層間絶縁膜を、イソプロパノールにて10分間超音波洗浄を行い、その後窒素ガスにて吹きつけ乾燥を行った。さらにUVオゾン洗浄装置(サムコインターナショナル社製、UV-300)にて、120秒間クリーニングを行った。さらにこれを真空蒸着装置(日本真空技術社製)の基板ホルダーに装着した。このときの基板ホルダーは第1図(b)の6のマスクの役割もする。真空蒸着装置の抵抗加熱ポートAにTPD(下記に構造式を示す)を入れ、さらに別の抵抗加熱ポートBにDTVX(下記に構造式を示す)を入れた。まず、ポートAに通電し、これを加熱しTPD層を600Å蒸

着して正孔注入層を形成した。次にポートBに通電し、DTVXを600A蒸着して発光層を形成した。さらに、予め用意したマグネシウムを入れておいた抵抗加熱ポートCとインジウムを入れておいた抵抗加熱ポートDに通電して、マグネシウム-インジウムの混合物電極を形成した。この際の蒸着レート比は9:1であった。

このようにして、ガラス基板/ITO/層間絶縁膜/正孔注入層/発光層/マグネシウム-インジウムの混合物電極からなる有機EL素子を得た。

得られた有機EL素子にマグネシウム-インジウムの混合物電極を陰極、ITOを陽極として直流5Vを印加し、発光させた。このときの発光パターンはフォトマスクと同一のパターンであった。パターン精度を調べるため、光学顕微鏡上で素子の発光のオン、オフを行ったところ、層間絶縁膜のある部分は発光しないことが確認され、層間絶縁膜の機能が確認されるとともにパターン精度が10μmと良好であることが判明した。また、このパターンに従う発光面は端部、面中央部の区別

なく均一であった。以上の実施例は、有機多層部を使用する材料及び電極材料の種類によらず、良好なパターン精度、発光面の均一性を保証する。



#### 比較例1

実施例1において、ガラス基板/ITOに層間絶縁膜を形成することなく、下部電極取り出し口を確保するためマスクをかけTPD層、DTVX層を同様にして蒸着、積層した。さらにここで真空槽をあげ、パターンニングされた別の蒸着用マスクをガラス基板/ITO/TPD層/DTVX

層の上に設置し、これを基板ホルダーに取りつけた。次いで、実施例1と同様にしてマグネシウム-インジウムの混合物電極を形成した。このようにしてガラス基板/ITO/正孔注入層/発光層/マグネシウム-インジウムの混合物電極からなる有機EL素子を得た。

得られた有機EL素子を実施例1(2)と同様に方法にて、パターン精度を測定したところ、最高50μm、場所により100~200μm程度であった。また、発光面端部が著しく発光面中央部と強度が異なる箇所が存在し、不均一であった。

#### 実施例2

##### (1) SiO<sub>2</sub>膜による層間絶縁膜の形成

スパッタリング法により前述のITO付ガラス基板上にSiO<sub>2</sub>を5000Å膜付けした。このときの基板温度は200℃であった。さらにマスクを前述の基板/ITO/SiO<sub>2</sub>にかけ、サムコインターナショナル社製リアクティブイオンエッチング装置RIE-10Nにて、CHF<sub>3</sub>をエッチングガスとして毎分1000Å/minの速度

でエッチングした。このときのガス容量は15SCCM、圧力0.04 Torr、高周波出力300Wであった。上述のマスクの開口部のSiO<sub>2</sub>は、エッチングされ、ITO面が露出した。以上によりSiO<sub>2</sub>層のパターン加工が完了した。

##### (2) EL素子の作製

実施例1(2)と同様に有機EL素子を作製し同様な試験を行ったところ、パターン精度は20μmと良好であることが判明した。また、やはり発光面は均一であり良好であった。

##### 【発明の効果】

以上の如く、本発明のEL素子は、パターン加工された層間絶縁膜を設けたことにより、パターン精度が極めて良好なものとなり、さらに従来法にて問題となった蒸着だれは生じないので発光面の均一性が高い。また、本発明の方法で、EL素子を製造する場合、従来必要であった発光層の蒸着マスクと対向電極の蒸着マスクの交換を必要とせず、この際に問題となった形成面の汚染がなく良品の素子が製造できる。

従って、本発明のＥＬ素子は、各種表示装置の発光素子、ディスプレイ素子等に幅広く利用することができる。

#### 4. 図面の簡単な説明

第1図(a), (b), (c)は、本発明の単色のＥＬ素子の製造過程の各段階における断面図を示し、第2図(a), (b), (c)は、本発明の二色のＥＬ素子の製造過程の各段階における断面図を示す。

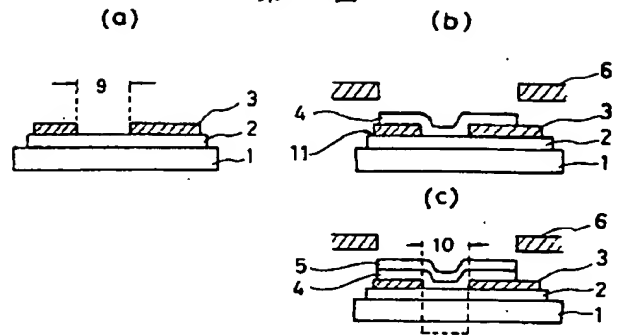
1・・・基板、2・・・下部電極、3・・・層間絶縁膜、4及び4'・・・発光層を含む有機多層部、5及び5'・・・対向電極、6、7、8・・・蒸着マスク、9、9a、9b・・・開口部、10・・・発光素子部分、11・・・下部電極取り出し位置

特許出願人 出光興産株式会社

代理人 弁理士 大谷 保



第 1 図



第 2 図

